

⑫ 公開特許公報(A)

昭63-221140

⑤Int.Cl.⁴ 識別記号 庁内整理番号 ④公開 昭和63年(1988)9月14日
 C 08 J 9/00 CES A-8517-4F
 B 29 C 55/02 7446-4F
 // B 29 K 23:00
 105:04
 B 29 L 7:00 4F 審査請求 未請求 発明の数 1 (全6頁)

⑬発明の名称 ポリプロピレン系多孔質フィルムの製造方法

⑭特 願 昭62-54583

⑮出 願 昭62(1987)3月10日

⑯発 明 者 鶴 原 賢 治 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

⑰発 明 者 田 中 茂 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

⑱発 明 者 矢 部 健 次 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

⑲出 願 人 東 レ 株 式 会 社 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号

明 細 書

1. 発明の名称

ポリプロピレン系多孔質フィルムの製造方法

2. 特許請求の範囲

ポリプロピレン100重量部、SP値が8.8～10.9の有機ポリマ20～100重量部及びメチルポリシロキサン粉末20～100重量部とからなる組成物を溶融押出し成形し、しかる後、延伸温度110～170℃で少なくとも一軸に延伸することによって面積倍率4～30倍とせしめることを特徴とするポリプロピレン系多孔質フィルムの製造方法。

3. 発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明は、印刷用合成紙や透湿防水シート用途などに必要な微細な連続貫通孔を有するポリプロピレン系多孔質フィルムの製造方法に関するものである。

〔従来の技術〕

従来、ポリプロピレン系多孔質フィルムの製造

方法としては、ポリオレフィン無機充填剤(クレー、珪藻土など)と非相溶性物質(ポリスチレン、フェノキシ樹脂など)を添加し、その後押出延伸する方法(例えば特開昭50-116561、特公昭53-18548号公報)が知られている。

〔発明が解決しようとする問題点〕

しかし、上記従来のポリプロピレン系多孔質フィルムの製造方法は下記の問題点を有している。

① ポリプロピレン系多孔質フィルムの孔径の均一性が悪いため、孔径の均一性が高く、かつ連続貫通孔を持ったフィルムが再現性良く製造できなかった。

② 従来、使用されているクレーなどの無機充填剤は、溶融押出する際の吸湿による分散不良や発泡の問題や、口金クリップ先端部にポリマを主体としたものが付着し、その付着物がフィルム上に移行し、フィルムの外観が悪かったり、延伸時のフィルム破れにつながり製膜作業性が著しく悪かった。

本発明は、かかる問題点を改善し、孔径の均一

性が良く、しかも連続貫通孔を持ったフィルムを再現性良く製造する方法、更には口金クリップ先端部付着物のフィルムへの移行が少なく、製膜作業性を改善したポリプロピレン系多孔質フィルムの製造方法を提供することを目的とする。

〔問題を解決するための手段〕

本発明は、ポリプロピレン100重量部、SP値が8.8～10.9の有機ポリマー20～100重量部及びメチルポリシロキサン粉末20～100重量部とからなる組成物を溶融押出し成形し、しかる後、延伸温度110～170℃で少なくとも一軸に延伸することによって面積倍率4～30倍とせしめることを特徴とするポリプロピレン系多孔質フィルムの製造方法である。

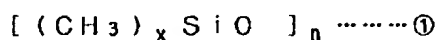
本発明におけるポリプロピレンとしては、アイソタクチック・インデックス(I. I)が90%以上のものが好ましく、より好ましくは95%以上である。また、テトラリン135℃で測定した極限粘度[η]が1.5～3.5 dl/gのものが好ましく、より好ましくは1.8～2.5 dl/gの範

囲のものである。ポリプロピレンホモポリマー、プロピレンとエチレン、ブテンとなの他のα-オレフィンとの共重合体なども使用できる。

本発明に用いられる有機ポリマーとはSP値(溶融度定数)が8.8から10.9の範囲の熱可塑性樹脂である。SP値とは相溶性を評価する尺度であり、詳細は後藤邦夫著「ポリマーブレンド」(日刊工業新聞社発行)などに記載されている。有機ポリマーのSP値が8.8未満であるとポリプロピレンへの相溶性が増し、延伸しても空隙率が低下し、連続貫通孔が再現性良く得られない。又、有機ポリマーのSP値が10.9を越えるとポリプロピレンへの相溶性が低下し、孔径の均一性が著しく低下する。SP値が8.8から10.9の有機ポリマーの例としては、ポリスチレン、ホリエチレンテレフタレート、ポリメチルメタアクリレート、フェノキシ樹脂、ポリ酢酸ビニル、クロロブレン等があり、特にポリスチレンやポリエチレンテレフタレートなどが好ましい。

本発明に用いるメチルポリシロキサン粉末とは、

組成式①で表わされる化合物の粉末である。特にX=1であるメチルポリシルセスキオキサン粉末が好ましい。



但し、X+Y=4, X>0, Y>0

混練性及び延伸時のフィルム破れを考慮すると、該粉末の粒径としては0.1～10μmが好ましく、より好ましくは1～5μmである。

ポリプロピレン100重量部に対して、添加する有機ポリマーは20～100重量部が良く、特に50～90重量部が好適である。またメチルポリシロキサン粉末は20～100重量部が良く、特に50～90重量部が好適である。

有機ポリマー量が20重量部未満では、延伸後のフィルムの連続貫通孔が再現性良く得られない。一方、100重量部を越えると押出延伸性が著しく悪化する。

また、メチルポリシロキサン粉末の量が20重量部未満では、延伸後のフィルムの連続貫通孔が再現性良く得られない。一方、100重量部を越

えると延伸後のフィルムの破断強度や破断伸度が大幅に低下する。

次に本発明のポリプロピレン系多孔質フィルムの製造方法について説明する。ポリプロピレン100重量部と有機ポリマー20～100重量部およびメチルポリシロキサン粉末20～100重量部とからなる組成物を、押出機、バンバリーミキサー、二本ロール、ニーダ等の溶融混練装置により混練する。得られた混練物を通常使用されているTダイ法、環状ダイ法等の方法でシート状に形成する。

このようにして得られたシート状物を少なくとも一方向に延伸する。延伸は、110℃～170℃(フィルム自体の温度)、好ましくは135℃～155℃で延伸する。延伸は延伸温度が110℃未満になると、ネッキングが発生したり、部分的に延伸できても、連続貫通孔性の良いフィルムを得ることができない。又、延伸温度が170℃を越えるとドロー延伸になり、連続貫通孔性の良いフィルムを得ることができない。

延伸は一軸方向または同時二軸もしくは逐次二軸に延伸しても良い。特に同時二軸もしくは逐次二軸が好ましい。延伸方法としては、ロール式延伸機、チューブラ式延伸機、テンター式延伸機が使用される。面積倍率は4～30倍で延伸を行なう。延伸面積倍率が4倍未満では延伸できない部分が発生しやすく、連続貫通孔性も劣り、30倍を越えると延伸時にフィルム破断が多発する。

延伸速度は特に限定されないが、早すぎるとフィルム破れが起るため1000～30,000%/min程度が良い。

〔作用〕

ポリプロピレンとSP値が8.8から10.9よりなる有機ポリマーとを均一分散させて延伸してもボイドが形成されるだけで、連続貫通孔が再現性良く製造しにくい。本発明におけるメチルポリシロキサン粉末はその構造式中に有機残基を持つことによりポリプロピレンと有機ポリマーとに相溶性が良く、分散性が良い。そこで本発明では、メチルポリシロキサン粉末を加えることにより、

③ 空隙率：延伸前後の比重により①式により算出した。

$$\text{空隙率}(\alpha) = 1 - d/D \quad \cdots \cdots ①$$

D……延伸前のフィルムの比重

d……延伸後のフィルムの比重

④ 連続貫通孔：流動パラフィン将该フィルム表面に滴下し、それが浸透した該フィルムの裏面に到達し、フィルムが透明になれば連続貫通孔である。その浸透時間が短い程連続貫通孔性に優れており、10秒未満で裏面に到達したものを(○)、10秒以上3分未満を(△)、3分以上経過しても浸透しないものは、連続貫通孔化が悪いと判断して(×)とした。

⑤ アイソタクチック・インデックス(I, I)は、沸騰n-ヘプタンの抽出残量(wt%)で表わす。

⑥ 極限粘度[η]：ASTM D 1601に従ってテトラリン中135℃で測定した。dl/g単位で表わす。

⑦ 口金付着物移行性：口金付着物が1時間当りにフィルム面に移行する回数で評価した。

その粉末が連続貫通孔の開孔開始剤として作用し、その組成物を延伸することにより連続貫通孔を再現性良く製造できるようになる。また押出時に、口金クリップ先端部にポリマー付着物が少なくなるという効果がある。その為、フィルムの空隙率がより均一になり、フィルムの外観も改善され、又、製膜作業性も改善される。

〔物性の測定方法並びに効果の評価方法〕

本発明の物性値の測定方法並びに効果の評価方法は次のとおりである。

① 平均孔径：SEM(走査電子顕微鏡)によって得られた表面写真の画像をイメージアナライザ処理し、孔の面積からその面積に等しい円の直径に換算し孔径とし、その平均値を平均孔径とした。

② 孔径の均一性：①で求めた平均孔径(γ)と孔径の標準偏差(σ)との関係より求めた。 σ/γ が小さい程、孔径の均一性が良く、 σ/γ の値が0から1/3未満を(○)、1/3以上から1/2未満を(△)、1/2以上を(×)とした。

回数が小さい程良好で、0.5回未満を(○)、0.5回以上1回未満を(△)、1回以上を(×)とした。

〔発明の効果〕

本発明はポリプロピレン100重量部とSP値が8.8から10.9よりなる有機ポリマー20～100重量部及びメチルポリシロキサン粉末20～100重量部とからなる組成物を溶融押し成形し、しかる後、延伸温度110～170℃で少なくとも一軸に延伸することによって面積倍率4～30倍とせしめることを特徴とするポリプロピレン系多孔質フィルムの製造方法としたので、次のごとき優れた効果を奏するものである。

(1) ポリプロピレン系多孔質フィルムの孔径の均一性が良く、連続貫通孔を持ったフィルムを再現性良く製造できた。

(2) 口金クリップ先端部のポリマー付着物が少なくなり、その付着物のフィルム上の移行が少なくなり、製膜作業性が改善された。

かくして得られた本発明のポリプロピレン系多

孔質フィルムは、滷過膜の他、おむつ等衣料素材として用いるのが特に好ましい。

〔実施例〕

本発明を実施例に基づいて説明する。

実施例1、比較例1～4

〔カ〕＝2.0、I. I＝97のポリプロピレン100重量部に対して、有機ポリマーとしてポリスチレン（商標にスタイロン683、旭化成工業（株））100重量部およびメチルポリシルセスキオキサン粉末（商標：XC99-501：東芝シリコーン（株））平均粒径 $2\mu\text{m}$ ）60重量部とをヘンシェルミキサーで混合し、200℃でペレット化した。このペレットを 40mm φ押出機に供給し、口金先端温度210℃のTダイから熔融押出し、厚さ $500\mu\text{m}$ のシートを成形した。該シートをフィルムストレッチャを使用して延伸温度150℃、延伸速度2000%/minで縦方向に3倍、横方向に3倍同時二軸延伸した。かくして得られたフィルムは厚さ $90\mu\text{m}$ でその品質は第1表の通りであった。表からわかるように孔

は第1表の通りであった。この表からわかるように、延伸温度が高いと連続貫通孔性が悪いことがわかる（比較例2）。

又、該シートをフィルムストレッチャで延伸温度150℃、延伸速度2000%/minで縦方向に1.5倍、横方向に1.5倍逐次延伸した。かくして得られたフィルムは、一部分のみしか延伸されておらず、連続貫通孔性が悪かった。このことより面積倍率が4倍未満だと部分延伸され、連続貫通孔性も悪いことがわかる（比較例3）。

又、該シートをフィルムストレッチャで延伸温度150℃、延伸速度2000%/minで縦方向に6.5倍、横方向に5倍逐次延伸を試みたが延伸途中で破断した。このことより面積倍率が30倍を越えると破断することがわかる（比較例4）。
実施例3

〔カ〕＝1.90、I. I＝97.5のポリプロピレン100重量部に対して、有機ポリマーとしてフェノキシ樹脂（“UCAR”フェノキシ樹脂PKHC ユニオン・カーバイト（株））90

径の均一性が優れ、連続貫通性も優れたフィルムが製造できた。シート状体伸出時の口金付着物移行性も優れていた（実施例1）。

又、該シートをフィルムストレッチャで延伸温度150℃、延伸速度3000%/minで縦方向に6倍一軸延伸した。かくして得られたフィルムは厚さ $100\mu\text{m}$ でその品質は第1表のとおりであった。この表からわかるように、孔径の均一性が優れ、連続貫通孔性も優れたフィルムが製造できた（実施例2）。

又、該シートをフィルムストレッチャで延伸温度105℃、延伸速度2000%/minで縦方向に3倍、横方向に3倍同時二軸延伸を試みたが、延伸途中で破断した。このことより延伸温度が低いと延伸時に破断が生じ、多孔質フィルムを製造できないことがわかる（比較例1）。

又、該シートをフィルムストレッチャで延伸温度175℃、延伸速度2000%/minで縦方向に3倍、横方向に3倍逐次二軸延伸した。かくして得られたフィルムは、厚さ $65\mu\text{m}$ でその品質

重量部およびメチルポリシルセスキオキサン粉末（商標：XC99-301：東芝シリコーン（株））平均粒径 $4\mu\text{m}$ ）30重量部とをヘンシェルミキサーで混合し、200℃でペレット化した。このペレットを 40mm φ押出機に供給し、口金先端温度210℃のTダイから熔融押出し、厚さ $500\mu\text{m}$ のシートを成形した。該シートをフィルムストレッチャを使用して延伸温度150℃、延伸速度2000%/minで縦方向に6.5倍、横方向に3倍逐次二軸延伸した。かくして得られたフィルムは、厚さ $50\mu\text{m}$ でその品質は第1表の通りであった。この表からわかるように孔径の均一性が優れ、又、連続貫通孔性も優れたフィルムが製造できた。シート状体伸出時の口金付着物移行性も優れていた。

実施例4

〔カ〕＝2.0、I. I＝97のポリプロピレン100重量部に対して、有機ポリマーとしてポリメチルメタアクリレート（商標アクリバットMF）30重量部およびメチルポリシルセスキオキ

サン粉末(商標:XC99-501:東芝シリコン(株))100重量部とをヘンシェルミキサーで混合し、180℃でペレット化する。このペレットを40mmφ押出機に供給し、口金先端温度180℃のTダイから熔融押出し、厚さ500μmのシートを形成した。該シートをフィルムストレッチャを使用して延伸温度150℃、延伸速度2000%/minで縦方向に3倍、横方向に3倍逐次二軸延伸した。かくして得られたフィルムは厚さ75μmでその品質は第1表の通りであった。この表からわかるように、孔径の均一性が優れ、又、連続貫通孔性も優れたフィルムが製造できた。シート状体伸出時の口金付着物移行性も優れていた。

比較例5

[η]=2.0、I、I=97のポリプロピレン100重量部に対して、有機ポリマーとしてポリスチレン(商標:スタイロン683、旭化成工業(株))5重量部およびメチルポリシルセスキオキサン粉末(商標:XC99-301:東芝シ

リコン(株))100重量部とをヘンシェルミキサーで混合し、200℃でペレット化する。このペレットを40mmφ押出機に供給し、口金先端温度210℃のTダイから熔融押出し、厚さ500μmのシートを形成した。該シートをフィルムストレッチャを使用して延伸温度150℃、延伸速度2000%/minで縦方向に3倍、横方向に3倍逐次二軸延伸した。

かくして得られたフィルムは厚さ60μmでその品質は第1表の通りであった。この表からわかるように、メチルポリシルセスキオキサン粉末量が少ないと連続貫通孔性が劣ることがわかる。比較例7

[η]=2.0、I、I=97のポリプロピレン100重量部に対して、有機ポリマーとしてポリスチレン(商標:スタイロン679、旭化成工業(株))100重量部および炭酸カルシウム(商標:シルバーW:白石工業(株))60重量部とをヘンシェルミキサーで混合し、200℃でペレット化する。

このペレットを40mmφ押出機に供給し、口金先端温度210℃のTダイから熔融押出し、厚さ

500μmのシート状体を形成した。該シートをフィルムストレッチャを使用して延伸温度150℃、延伸速度2000%/minで縦方向に3倍、横方向に3倍逐次二軸延伸した。

かくして得られたフィルムは、厚さ60μmでその品質は第1表の通りであった。この表からわかるように、有機ポリマー量が少ないと連続貫通孔性が劣ることがわかる。

比較例6

[η]=2.0、I、I=97のポリプロピレン100重量部に対して、有機ポリマーとしてフェノキシ樹脂(UCARフェノキシ樹脂PKHHユニオン・カーバイト(株))100重量部およびメチルポリシルセスキオキサン粉末(商標:XC99-301:東芝シリコン(株))5重量部とをヘンシェルミキサーで混合し、200℃

でペレット化する。このペレットを40mmφ押出機に供給し、口金先端温度210℃のTダイから熔融押出し、厚さ500μmのシート状体を形成した。該シートをフィルムストレッチャを使用して延伸温度150℃、延伸速度2000%/minで縦方向に3倍、横方向に3倍逐次二軸延伸した。かくして得られたフィルムは厚さ95μmでその品質は第1表の通りであった。この表からわかるように充填剤に炭酸カルシウムを用いると孔径の均一性が劣り、口金付着物移行性が劣ることがわかる。

比較例8

[η]=2.0、I、I=97のポリプロピレン100重量部に対して、有機ポリマーとしてポリイソブチレン(商標:テトラックス-3T日本石油化学(株))100重量部およびメチルポリシルセスキオキサン粉末(商標:XC99-501:東芝シリコン(株))60重量部とをヘンシェルミキサーで混合し、200℃でペレット化する。このペレットを40mmφ押出機に供給し、口金先端温度210℃のTダイから熔融押出し、厚さ500μmのシートを形成した。該シートをフィルムストレッチャを使用して延伸温度150

℃、延伸速度2000%/minで縦方向に3倍、横方向に3倍に逐次二軸延伸した。かくして得られたフィルムは厚さ60 μ mでその品質は第1表の通りであった。SEMでは孔が確認できなかった。この表からわかるように、有機ポリマーとしてはポリイソブチレン(SP=8.1)を使用すると連続貫通孔性が劣ることがわかる。

第 1 表

		実 施 例				比 較 例							
		1	2	3	4	1	2	3	4	5	6	7	8
原 料 (直 径) 組 成 部	ポリプロピレンの基 有機ポリマーの種類	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
		ポリス チレン	ポリス チレン	フェノ キシ	PMMA	ポリス チレン	→	→	→	→	フェノ キシ	ポリス チレン	ポリイソ ブチレン
	S P 値	8.9	8.9	10.7	9.2	8.9	→	→	→	→	10.7	8.9	8.1
	有機ポリマーの値	100	100	90	30	100	→	→	→	5	100	100	100
	充填剤の種類	メチルポリシル セスキオキサン	→	→	→	→	→	→	→	→	→	炭酸カル シウム	メチルポリ シルセスキ オキサン
延 伸 条 件	充填剤の量	60	60	30	100	60	→	→	100	100	5	60	60
	延伸温度(℃)	150	150	135	155	105	175	150	150	150	→	→	→
	縦延伸倍率(倍)	3	6	6.5	3	→	→	1.5	6.5	3	→	→	→
フ ィ ル ム の 性 質	横延伸倍率(倍)	3	1	3	3	3	→	1.5	5	3	→	→	→
	平均孔径(μ m)	13	10	15	17	—	—	—	—	10	15	27	—
	孔径の均一性	○	○	○	○	—	×	—	—	○	○	×	—
	空隙率(%)	81	70	73	83	—	0	—	—	50	25	75	0
	連続貫通孔性	○	○	○	○	—	×	×	—	×	×	△	×
備 考	口金付移動移行性	○	○	○	○	○	○	○	○	△	△	×	○
						延伸途 中で破 断			延伸途 中で破 断				

特許出願人 東レ株式会社

First Hit☐ Generate Collection Print

L1: Entry 1 of 2

File: JPAB

Sep 14, 1988

PUB-NO: JP363221140A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 63221140 A

TITLE: PRODUCTION OF POROUS POLYPROPYLENE FILM

PUBN-DATE: September 14, 1988

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

COUNTRY

UHARA, KENJI

TANAKA, SHIGERU

YABE, KENJI

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME

COUNTRY

TORAY IND INC

APPL-NO: JP62054583

APPL-DATE: March 10, 1987

US-CL-CURRENT: 425/335

INT-CL (IPC): C08J 9/00; B29C 55/02

ABSTRACT:

PURPOSE: To obtain a film having good uniformity of pore diameters and through holes in good reproducibility, by melt-extruding a composition comprising propylene, a specified organic polymer and a methylpolysiloxane powder and stretching the obtained film at a specified area ratio.

CONSTITUTION: A composition comprising 100pts.wt. polypropylene, 20~100pts. wt. organic polymer of an SP value of 8.8~10.9 and 20~100pts.wt. methylpolysiloxane powder is melt-extruded, and the obtained film is at least uniaxially stretched at a stretching temperature of 110~170°C so that the area ratio may be 4~30. Examples of said organic polymers include polystyrene, polyethylene terephthalate, polymethyl methacrylate, phenoxy resins, polyvinyl acetate and chloroprene, and especially, polystyrene, polyethylene phthalate or the like is desirable.

COPYRIGHT: (C)1988,JPO&Japio

First Hit**End of Result Set**☐ **Generate Collection** **Print**

L1: Entry 2 of 2

File: DWPI

Sep 14, 1988

DERWENT-ACC-NO: 1988-302712

DERWENT-WEEK: 198843

COPYRIGHT 2004 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Rubber-steel cord adhesion accelerator - comprises organic molybdenum cpd.
compounded to nickel salt

PATENT-ASSIGNEE:

ASSIGNEE

CODE

TORAY IND INC

TORA

PRIORITY-DATA: 1987JP-0054583 (March 10, 1987)

Search Selected**Search ALL****Clear**

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	MAIN-IPC
<input type="checkbox"/> JP 63221140 A	September 14, 1988		006	

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DATE	APPL-NO	DESCRIPTOR
JP 63221140A	March 10, 1987	1987JP-0054583	

INT-CL (IPC): B29C 55/02; B29K 23/00; B29K 105/04; B29L 7/00; C08J 9/00

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 63221140A

BASIC-ABSTRACT:

Rubber-steel cord adhesion accelerator comprises organic-Mo cpd. compounded to Ni salt.

Rubber-steel cord adhesion accelerator prepn. comprise adding organic Mo cpd. to Ni salt in the presence of xylene under stirring and heating the obtd. soln. under reduced pressure to concentrate the soln. by removing xylene. The compounding ratio of organic Mo cpd. to Ni salt is 0.05-5, esp. 0.1-0.3. The organic Mo cpd. is Mo dithiocarbamate or Mo dithiophosphate. The soln. process is carried out at 130 deg.C under stirring. The concn. process is carried out by heating the soln. at 170-180 deg.C under reduced pressure of below 20 torr for 1.5 hr. to vapourise the xylene.

USE/ADVANTAGE - The adhesion accelerator has the same adhesive strength and rubber adhesion as Co salt and improves adhesive strength when used in a reduced amt. compared to when Ni salt is used.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TER MS: RUBBER STEEL CORD ADHESIVE ACCELERATE COMPRISE ORGANIC MOLYBDENUM
COMPOUND COMPOUND NICKEL SALT

DERWENT-CLASS: A12 A60 A95 E12

CPI-CODES: A08-M01C; A08-R05; A12-S08C; E05-G09A;

UNLINKED-DERWENT-REGISTRY-NUMBERS: 5333U

POLYMER-MULTIPUNCH-CODES-AND-KEY-SERIALS:

Key Serials: 0009 0011 0032 0204 0206 0224 0093 0105 0123 0228 2215 2220 2307 3252

Multipunch Codes: 014 03& 032 07& 07- 09& 15- 18& 18- 228 292 303 308 309 44& 54&
546 597 600 654 722 723

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C1988-133977